

Title	パイロフィライト中のナノポアにおけるメタンの流動現象
Author(s)	澤, 侑乃輔
Citation	京都大学化学研究所スーパーコンピュータシステム研究成果報告書 (2014), 2014: 80-81
Issue Date	2014
URL	<a href="http://hdl.handle.net/2433/186378">http://hdl.handle.net/2433/186378</a>
Right	
Type	Article
Textversion	publisher

パイロフィライト中のナノポアにおけるメタンの流動現象  
Hydrodynamics of Methane in Pyrophyllite Nanopores

工学研究科 都市社会工学専攻 環境資源システム工学研究室 澤 侑乃輔

## 背景と目的

ナノポアにおける流体挙動を解明することの重要性が高まってきている。というのも、それが石油・ガス貯留層工学、バイオテクノロジー、そして環境工学など多くの産業と関わっているからである。貯留層工学に関しては、粘土は様々な浸透率をもち、浸透率が低いと二酸化炭素、メタン、有毒化学物質や放射性廃棄物を閉じ込める良好なバリアとなりうる一方、シェールガス、シェールオイルの生産における障壁にもなる。

粘土層間の流体の移動に影響を与える要素は様々であり、粘土のタイプ、対イオンの性質、他分子の存在、温度、電荷などが挙げられる。また準弾性中性子散乱や分子動力学シミュレーションによって、層間の空隙に閉じ込められている水の移動は非常に拡散性があるということが示せたということが報告されている。Botan らは 2011 年に、ポアの幅を 2nm から 9nm まで変え、流体挙動に対する表面の影響を調べるといったシミュレーションを行い、粘土の表面では 2.1 Å のすべりが生じたと報告した。また彼らは 2013 年には、粘土中のナノポアにすべりなし境界条件、すべり境界条件を適用し、電荷が境界条件に与える影響についても議論している。そのシミュレーションでは荷電されたモンモリロナイトと荷電されていないパイロフィライトが扱われた。その結果、粘土表面におけるすべりなし境界条件、またすべり境界条件は水分子と表面との静電的な相互作用に強く依存しているということが分かった。しかしながら、すべりに対する粘土のタイプの影響はほとんど見られなかった。

本研究では、パイロフィライトと石英中のナノポアのメタンの流体挙動を調べる。パイロフィライトの正確な構造を得る必要があったが、従来使用していたソフトではそれが困難であったため、今回マテリアルスタジオを利用した。このソフトと可視化ソフトである vesta を併用し、正確な粘土構造を得ることができた。マテリアルスタジオを利用した理由としては以下の二点が挙げられる。一つは水素を付加できるということである(図 1)。参考論文[1,2]で示されているパイロフィライトの構造と同じものであれば、水素以外の原子の配置をインターネットからダウンロードできるので、マテリアルスタ

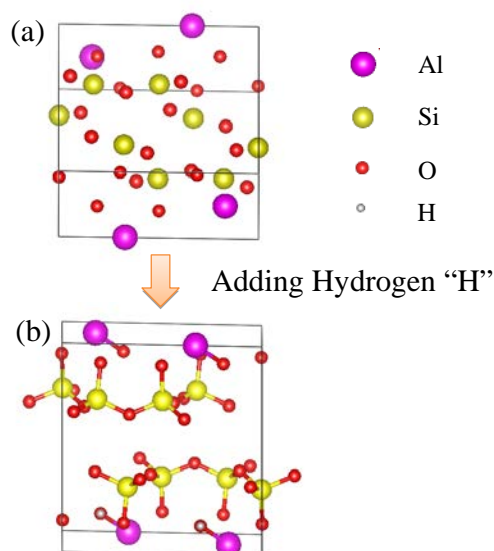


図 1. パイロフィライトの原子配置

(a)水素付加前 (b)水素付加後

ジオを用いてそこに水素を付加した。しかしこの段階ではまだ正確な構造ではない。そこで、マテリアルスタジオを利用した二つ目の理由として、原子同士の結合の長さや結合角を調整できるということが挙げられる(図 2)。参考論文中のデータに合うように結合の長さ、結合角を調整し、最終的に正確な構造を得ることができた。

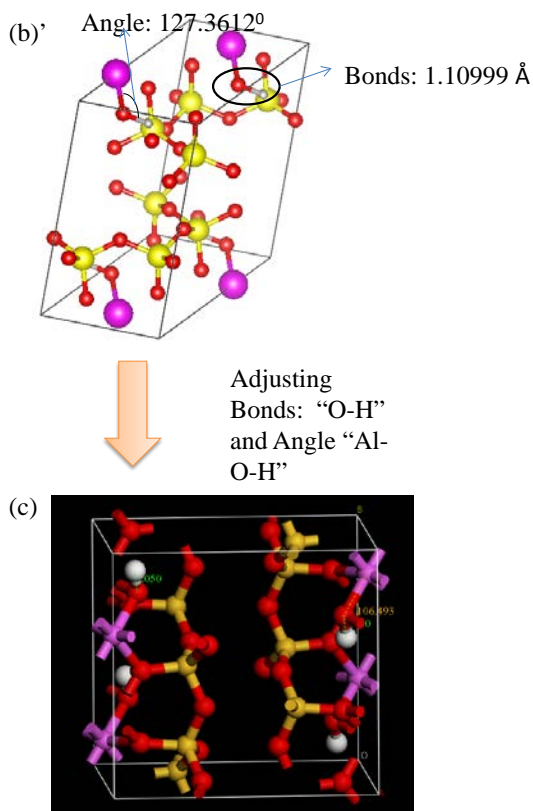


図 2. パイロフィライトにおける H-O 結合の長さと Al-O-H 結合の角度

(b)' Bonds: O-H 1.10999Å, Angle: 127.3612° (c) Bonds: O-H 1.050Å, Angle: 106.193°

## 結果

上記のように O-H 結合の長さ、及び Al-O-H 結合の角度を調整することで、パイロフィライトの正確な構造を得ることができた。この構造データは分子動力学シミュレーションに適用することができる。

## 今後の方針

今回は研究の方向性の変化に伴い、当初のものとは異なる目的のために本ソフトを利用した。今後は、巨大分子構造を持つ有機物であるケロジェンの分子構造をより正確に構築するために本ソフトを利用したいと考えている。分子構造が得られれば、それを用いてケロジェン中での流体挙動をシミュレートできる可能性があり、地下の貯留層における石油・ガスなどの埋蔵量を推定する際の手がかりになるのではと考えている。

## 参考文献

- [1] Molecular Models of Hydroxide, Oxyhydroxide, and clay phases and the development of a General force field. R. T. Cygan, J-J Liang, and A. G. Kalinichev. J. Phys. Chem. B. 2004, 108, 1255-1266.
- [2] Single crystal X-ray refinement of pyrophyllite-1 Tc. J. H. Lee and S. Guggenheim. Am. Mineral. 1981, 66 350-357.